

10 / 534053

PCT/JP03/13906

06 MAY 2005

21.11.03

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

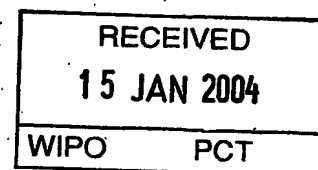
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2002年11月 8日

出 願 番 号
Application Number: 特願2002-325569
[ST. 10/C]: [JP2002-325569]

出 願 人
Applicant(s): 積水化学工業株式会社

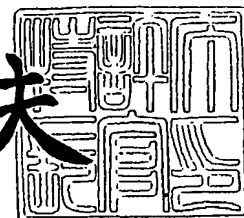


PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b).

2003年12月25日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2003-3107103

BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願

【整理番号】 02P01417

【提出日】 平成14年11月 8日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B01J 13/14

【発明者】

【住所又は居所】 山口県新南陽市開成町 4 5 6 0 積水化学工業株式会社
内

【氏名】 山内 博史

【特許出願人】

【識別番号】 000002174

【氏名又は名称】 積水化学工業株式会社

【代表者】 大久保 尚武

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 005083

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 熱膨張性マイクロカプセル

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 シェルポリマーがニトリル系モノマーを 7 0 重量%以上含有するモノマー成分から得られるポリマーであり、該ポリマーの軟化点以下の温度でガス状になる揮発性膨張剤を含む熱膨張性マイクロカプセルであって、ニトリル系モノマー成分に占めるアクリロニトリルの割合が 4 0 ~ 8 5 重量%であり、揮発性膨張剤に占める分岐鎖状または環状の構造をとる揮発性膨張剤の割合が 3 0 重量%以上であることを特徴とする熱膨張性マイクロカプセル。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明の目的は、広い温度領域で発泡させることができる熱膨張性マイクロカプセルを提供することにある。すなわち、低温で熱膨張させることができ、高温においても膨張したマイクロカプセルが収縮しにくい熱膨張性マイクロカプセルを提供することにある。

【0 0 0 2】

【従来技術】

熱膨張性マイクロカプセルは軽量化を目的とした塗料やプラスチックの充填材など、種々の分野への用途展開が図られている。熱膨張性マイクロカプセルは、通常、揮発性膨張剤を熱可塑性樹脂によりマイクロカプセル化したものである。

このような熱膨張性マイクロカプセルは、水系分散媒体中で、少なくとも発泡剤と重合性単量体とを含有する重合性混合物を懸濁重合する方法により製造されてきた。重合反応が進むにつれて、生成する重合体によりシェルが形成され、その中に揮発性膨張剤が包み込まれ熱膨張性マイクロカプセルが得られる。

【0 0 0 3】

近年、熱膨張性マイクロカプセル単体の利用においても、熱膨張性マイクロカプセルを含有する塗料などの材料においても、より低温度で熱膨張することが求められている。低温で発泡する熱膨張性マイクロカプセルを得るには、低沸点の

溶剤を揮発性膨張剤として用いることや、重合体のガラス転移温度 (T_g) が低くなるような重合性単量体を用いることなどが知られている。

また、オープンなどで加熱して熱膨張をさせる場合、どうしても温度ムラがあり、高温にさらされた部分だけ膨張後のマイクロカプセルが再び収縮してしまう(いわゆる、「へたり」)が生じてしまうといった問題があった。

また、加熱温度が低温であった部分は発泡しないなど品質にムラができ歩留まりが悪いといった問題があった。特に低い温度で熱膨張する従来の熱膨張性マイクロカプセルは、材料の端面だけが高温になるような用途では膨張後のマイクロカプセルの「へたり」が生じやすいといった問題が顕著であった。

【0004】

耐熱性に優れた熱膨張性マイクロカプセルを得る手段としては、例えば特許文1に記載されている手段があげられる。しかしながら、上記手法では耐熱性に優れたマイクロカプセルが得られるが、低温では発泡させることができないといった問題があった。

【0005】

【特許文献1】

特許第2894990号

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、低温で熱膨張させることができ、高温においても膨張後のマイクロカプセルが再び収縮しにくく、広い温度領域で発泡させることができる熱膨張性マイクロカプセルを提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、低い温度で熱膨張させることができる従来の熱膨張性マイクロカプセルは、高温にさらされると揮発性膨張剤がシェルポリマーから抜けてマイクロカプセルがしぼむため「へたり」を生じると考え、揮発性膨張剤がシェルポリマーから抜けにくくするために以下の手段を考えた。

1) 揮発性膨張剤としてかさ高い立体構造の分子を選ぶ。

2) シェルポリマーのガスバリア性を高くする。

すなわち、本発明における揮発性膨張剤は、*n*-ペンタン、*n*-ヘキサン等の直鎖状の分子だけからなる揮発性膨張剤ではなく、イソブタン、イソペンタン、ネオペンタン、イソヘキサン、シクロヘキサンなどのような分岐鎖状もしくは環状構造の揮発性膨張剤を含有する。

また、本発明におけるシェルポリマーは、アクリロニトリル、メタクリロニトリル等のニトリル系モノマー成分の割合が高いモノマーから形成される。つまり、揮発性膨張剤がいかにかさ高い立体構造を有していても、シェルポリマーのガスバリア性が高くなければ揮発性膨張剤はシェルポリマーから抜けていくばかりで膨張させることができない。一方、シェルポリマーのガスバリア性が高くても揮発性膨張剤がシェルポリマーから抜けやすい構造であれば高温に加熱され軟化したシェルポリマーから揮発性膨張剤が抜けマイクロカプセルはしぼんでしまう。

また、分岐鎖状もしくは環状構造の揮発性膨張剤は一般的に直鎖状の揮発性膨張剤に比べ沸点が低い。したがって、低い温度で熱膨張させたい場合は有利である。

【0008】

本発明者は、検討の結果、シェルポリマーがニトリル系モノマーを70重量%以上含有するモノマー成分から得られるポリマーであり、該ポリマーの軟化点以下の温度でガス状になる揮発性膨張剤を含む熱膨張性マイクロカプセルであって、ニトリル系モノマー成分に占めるアクリロニトリルの割合が40～85重量%であり、揮発性膨張剤に占める分岐鎖状または環状の構造をとる揮発性膨張剤の割合が30重量%以上であることを特徴とする熱膨張性マイクロカプセルが課題を達成しうることを見いだした。

【0009】

本発明に使用するニトリル系モノマーとしてはアクリロニトリル、メタクリロニトリル、 α -クロルアクリロニトリル、 α -エトキシアクリロニトリル、フマロニトリルまたはこれらの任意の混合物などが例示される。なかでもアクリロニトリルまたはメタクリロニトリルが特に好ましい。モノマー成分にしめるニトリル系モノマーの割合は70重量%以上、好ましくは80重量%である。70重量

%以下であるとガスバリア性が低下することにより高温で「へたり」が生ずる。

【0010】

ニトリル系モノマー中のアクリロニトリル成分は40重量%以上85重量%以下、好ましくは50重量%以上70重量%以下、さらに好ましくは55重量%以上65重量%以下である。上記比率に限定される理由は明らかではないが、重合効率が一般的にあまり高くないニトリル系モノマーの中でもアクリロニトリルは比較的反応性が高い。アクリロニトリルのガスバリア性はメタクリロニトリル等に比べて高くないことからニトリル系モノマー成分の重合効率を高めるとシェルポリマーのガスバリア性が高まるようである。したがって、重合効率の高いニトリル系モノマーとガスバリア性の高いニトリル系モノマーとの比率を最適にすると非常に高いガスバリア性を達成できることを見いだした。

【0011】

非ニトリル系モノマーとしてはスチレン、 α -メチルスチレン、酢酸ビニル、メタクリル酸エステル類、アクリル酸エステル類からなる群から選択される。これらの中で酢酸ビニルが特に好ましい。モノマー成分にしめる非ニトリル系モノマーの割合は30重量%以下であり、好ましくは20重量%以下である。

また、モノマー成分には必要に応じ架橋剤を少量添加することも可能である。架橋剤としてはジビニルベンゼン、ジメタクリル酸エチレングリコール、ジメタクリル酸トリエチレングリコール、トリアクリルホルマール、トリメタクリル酸トリメチロールプロパン、メタクリル酸アリル、ジメタクリル酸1,3-ブチルグリコール、トリアリルイソシアネート、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート等が例示されるが、好ましくはトリメタクリル酸トリメチロールプロパンやジペンタエリスリトールヘキサアクリレートである。モノマー成分にしめる架橋剤の好ましい割合は0.1～1重量%である。

【0012】

本発明に係わるマイクロカプセルの壁材は上記の成分にさらに所望により重合開始剤を適宜配合することによって調製される。好適な重合開始剤としてはアゾビスイソブチロニトリル、ベンゾイルパーオキシド、ラウロイルパーオキシド、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、t-ブチルパーオキシド、2,2

ーアゾビス(2,4-ジメチルワレロニトリル)、t-ブチルパーオキシビバレート、ジーsec-ブチルパーオキシジカーボネート、ジーt-ブチルパーオキシヘキサヒドロテレフタレート等があげられる。

【0013】

マイクロカプセルに内包される揮発性膨張剤は上記のモノマー成分から調製されるポリマーの軟化点(一般的には約120~150℃)以下の温度でガス状になる物質であり、例えばプロパン、プロピレン、ノルマルブタン、イソブタン、ブテン、ノルマルペンタン、イソペンタン、ネオペンタン、ノルマルヘキサン、イソヘキサン、シクロヘキサン、ヘプタン、2,2-ジメチルヘキサン、石油エーテル、メタンのハロゲン化物(塩化メチル、メチレンクロリド、 CCl_3F 、 CCl_2F_2 等)、テトラアルキルシラン(テトラメチルシラン、トリメチルエチルシラン等)などの低沸点液体や、アゾイソブチロニトリル(AIBN)等の加熱により分解してガス状になる化合物が挙げられる。

【0014】

本発明で用いられる揮発性膨張剤は、分岐鎖状または環状の構造をとる揮発性膨張剤を30重量%以上含有する。好ましくは50重量%以上、より好ましくは80重量%以上である。分岐鎖状または環状の構造を取る揮発性膨張剤とは、例えばイソブタン、イソペンタン、ネオペンタン、イソヘキサン、シクロヘキサン、2,2-ジメチルヘキサンなどの、かさ高い立体構造を有する揮発性膨張剤である。分岐鎖状または環状の構造を有する揮発性膨張剤の割合が30重量%より少ないと、高温に加熱されたマイクロカプセルに「へたり」が生じてしまう。

【0015】

熱膨張性マイクロカプセルを製造する方法は特に限定されない。特に好適な方法は、例えば特公昭42-26524号公報に記載されているような、モノマー、架橋剤、揮発性膨張剤、重合開始剤を混合し水性媒体中に分散させて懸濁重合する方法があげられる。懸濁重合に用いる水性媒体は特に限定されないがシリカ、リン酸カルシウム、炭酸カルシウム、塩化ナトリウム、硫酸ナトリウム等の無機分散剤を添加してもよく、ジエタノールアミン-アジピン酸縮合物、ゼラチン、メチルセルロース、ポリビニルアルコール、ポリエチレンオキサイド、ジオクチ

ルスルホサクシネート、ソルビタンエステル等の有機分散剤を添加してもよい。水性媒体としては脱イオン水が好ましく、酸を加えてpHを約3～4に調整しておくことが好ましい。

【0016】

【実施例】

以下、「部」は重量部を表す。

（実施例1）

アクリロニトリル51部、メタクリロニトリル45部、メタクリル酸メチル1部、酢酸ビニル3部、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート0.17部、イソペンタン25部、*t*-ブチルパーオキシビバレート1部、ジ-*sec*-ブチルパーオキシジカーボネート0.3部、ジ-*t*-ブチルパーオキシヘキサヒドロテレフタレート1.2部からなる油相を作製した。次いで、脱イオン水7300部、コロイダルシリカ分散液（固形分20%）1260部、重クロム酸カリウム（2.5%水溶液）45部、ポリビニルピロリドン8部、塩化ナトリウム2200部、塩酸8.5部からなる水相を作成した。上記油相と水相を混合したのち、ホモジナイザーを使用し、6000rpmで5分間ミキシングを行ない、4～5kg/cm²の加圧下、60℃で20時間反応させて熱膨張性マイクロカプセルを得た。セントルで予備脱水した後、40℃に保った静置乾燥機で得られた熱膨張性マイクロカプセルを乾燥し、粉体状の熱膨張性マイクロカプセルを得た。

【0017】

（実施例2～7）

モノマーと揮発性膨張剤を表1に示す割合に変更したこと以外は実施例1と同様に行って熱膨張性マイクロカプセルを得た。表1中、単位は重量部である。

【0018】

（比較例1）

攪拌機付き重合反応器に脱イオン水100部、コロイダルシリカ分散液（固形分30重量%）15部を仕込み、ジエタノールアミンとアジピン酸縮合物（10%水溶液）2.5部を加えた。重クロム酸カリウム（2.5%水溶液）を加えたのちpH4に調整して水相を調製した。ついで、ネオペンタンを20重量%含む

メチルメタクリレート100部及び過酸化ベンゾイル0.1部を混合し油相を調製した。この油相を水相に加え攪拌しながら反応させた。ついで濾過を行い熱膨張性マイクロカプセルを取り出した。

【0019】

(比較例2)

メチルメタクリレート90部、アクリロニトリル(表1では「VCN」と略す)10部、ジビニルベンゼン0.025部の混合物に変更し、揮発性膨張剤をネオペンタンからネオヘキサンに変更した油相を用いたこと以外は、比較例1と同様に行って熱膨張性マイクロカプセルを製造した。

【0020】

(比較例3)

メチルメタクリレート50部、アクリロニトリル50部、ジビニルベンゼン0.025部の混合物に変更し、揮発性膨張剤をネオペンタンからネオヘキサンに変更した油相を用いたこと以外は、比較例1と同様に行って熱膨張性マイクロカプセルを製造した。

【0021】

(比較例4)

アクリロニトリル2450部、メタクリル酸メチル400部、トリアクリルホルマール9部、n-ペンタン550部、アゾビスイソブチロニトリル15部を混合した油相と、脱イオン水6300部、コロイダルシリカ分散液(固形分20%、日産化学社製)1080部、重クロム酸カリウム(2.5%水溶液)30部、ジエタノールアミン-アジピン酸縮合物(50%水溶液、酸価100mg KOH/g)40部、塩化ナトリウム2200部を混合し塩酸1.5部を加えてpH3.2に調製した水相をホモミキサー(特殊機化工業社製)を用い窒素雰囲気下2kg/m²に加圧しつつ10000rpmで60秒間攪拌混合した後、窒素置換した容積15リットルの加圧重合反応容器に仕込み、2kg/m²に加圧して、60℃で20時間反応させた。

【0022】

水洗と遠心分離を数回繰り返したのち脱水して熱膨張性マイクロカプセルを含

む水分 32% の湿潤ケーキを得た。ついで一昼夜風乾して平均粒径 $21.4\ \mu\text{m}$ の熱膨張性マイクロカプセルを得た。

【0023】

(比較例 5)

脱イオン水 600 部、コロイダルシリカ分散液 (固形分 20%) 100 部、ジエタノールアミン-アジピン酸縮合物 (50% 水溶液) 5 部を混合し硫酸を用いて pH 3 の水相を調製した。アクリロニトリル 150 部、メタクリル酸メチル 60 部、アクリル酸メチル 40 部、イソブタン 45 部、ノルマルペンタン 25 部、ジイソプロピルオキシジカーボネート 5 部からなる油相を調製した。水相中で懸濁重合し、平均粒径 $16.1\ \mu\text{m}$ の熱膨張性マイクロカプセルを得た。

【0024】

(比較例 6)

アクリロニトリル 60 部、塩化ビニリデン 150 部、メタクリル酸メチル 40 部、イソブタン 55 部、ノルマルペンタン 15 部、ジイソプロピルオキシジカーボネート 5 部からなる油相を調製し、比較例 5 と同様の水相中で懸濁重合し、平均粒径 $11.7\ \mu\text{m}$ の熱膨張性マイクロカプセルを得た。

【0025】

(比較例 7)

アクリロニトリル 170 部、メタクリル酸メチル 130 部、イソブタン 70 部、石油エーテル 30 部、ジイソプロピルオキシジカーボネート 5 部を混合し油相を調製し、比較例 5 と同様の水相中で懸濁重合し、平均粒径 $12.7\ \mu\text{m}$ の熱膨張性マイクロカプセルを得た。

【0026】

【表 1】

| | AN | MAN | MMA | VA | イソブタン | イソペンタン | ノルマルペンタン |
|-------|----|-----|-----|----|-------|--------|----------|
| 実施例 1 | 51 | 45 | 1 | 3 | 0 | 25 | 0 |
| 実施例 2 | 81 | 15 | 1 | 3 | 0 | 25 | 0 |
| 実施例 3 | 61 | 35 | 1 | 3 | 0 | 12.5 | 12.5 |
| 実施例 4 | 61 | 25 | 11 | 3 | 0 | 25 | 0 |
| 実施例 5 | 61 | 35 | 1 | 3 | 0 | 25 | 0 |
| 実施例 6 | 61 | 35 | 1 | 3 | 12.5 | 12.5 | 0 |
| 実施例 7 | 62 | 35 | 0 | 3 | 0 | 25 | 0 |

単位は重量部である。

【0027】

【表 2】

| | ニトリル割合 | アクリロニトリル割合 | 分岐状又は環状膨張剤割合 | 発泡開始温度 | 膨張性 | へたり |
|-------|--------|------------|--------------|----------|-----|-----|
| 実施例 1 | 96% | 53% | 100% | 120～130℃ | ○ | ○ |
| 実施例 2 | 96% | 84% | 100% | 120～130℃ | ○ | ○ |
| 実施例 3 | 96% | 64% | 50% | 125℃以下 | ◎ | ○ |
| 実施例 4 | 86% | 71% | 100% | 125℃以下 | ◎ | ○ |
| 実施例 5 | 96% | 64% | 100% | 120℃以下 | ◎ | ◎ |
| 実施例 6 | 96% | 64% | 100% | 120℃以下 | ◎ | ◎ |
| 実施例 7 | 97% | 64% | 100% | 120～130℃ | ○ | ○ |
| 比較例 1 | 0% | 0% | 100% | 殆ど発泡せず | × | × |
| 比較例 2 | 10% | 100% | 100% | 殆ど発泡せず | × | × |
| 比較例 3 | 50% | 100% | 100% | 120℃以下 | △ | × |
| 比較例 4 | 95% | 67% | 0% | 130～140℃ | ○ | × |
| 比較例 5 | 60% | 100% | 64% | 120～130℃ | ○ | × |
| 比較例 6 | 24% | 100% | 79% | 120℃以下 | × | × |
| 比較例 7 | 57% | 100% | 70% | 120℃以下 | △ | × |

ニトリル割合は、シェルポリマー中のニトリル系モノマーの含有割合を重量％で表す。

アクリロニトリル割合は、ニトリル系モノマーに占めるアクリロニトリルの含有割合を重量％で表す。

分岐鎖状または環状膨張剤割合は、揮発性膨張剤に占める分岐鎖状または環状の構造をとる揮発性膨張剤の含有割合を重量％で表す。

【0028】

発泡開始温度、膨張性及び高温での「へたり」の評価方法

T A インスツルメンツ社製 熱機械分析装置 2940型 (2940 TMA) を使用し試料 250 μ g を直径 7 mm 深さ 1 mm の円筒状のアルミカップに入れ、上から 0.1 N の力を加えた状態で 80 $^{\circ}$ C から 220 $^{\circ}$ C まで 5 $^{\circ}$ C / 分の昇温速度で加熱した際の加圧端子の垂直方向における変位量を測定した。ここで、変位が観測され始めた温度を発泡開始温度とした。また、最大変位量を下記基準で評価し発泡倍率が高いか膨張性を判断した。

[膨張性の評価基準]

◎: 800 μ m 以上

○: 500 μ m 以上

△: 100 μ m 以上

×: 100 μ m 以下

さらに、170 $^{\circ}$ C における変位量を下記基準で評価し高温での「へたり」の程度を判断した。

[高温での「へたり」の評価基準]

◎: 500 μ m 以上

○: 300 μ m 以上

△: 100 μ m 以上

×: 100 μ m 以下

【0029】

実施例 1～7、比較例 1～7 について評価結果を表 2 に示す

表 2 中のニトリル割合は、シェルポリマー中のニトリル系モノマーの含有割合を重量%で表す。表中のアクリロニトリル割合は、ニトリル系モノマーに占めるアクリロニトリルの含有割合を重量%で表す。また、分岐鎖状または環状膨張剤割合は揮発性膨張剤に占める分岐鎖状または環状の構造をとる揮発性膨張剤の含有割合を重量%で表す。

【0030】

実施例では低温でもマイクロカプセルを熱膨張させることができ発泡倍率も高い。また、高温でも「へたり」が生じなかった。したがって、低温から高温まで

広い温度範囲で高い発泡倍率が得られることが確認された。

【0031】

一方、比較例1、2、6はニトリル系モノマーを含まないまたはわずかしかなかった。含まない為にシェルポリマーのガスバリア性がほとんどなく、ほとんど膨張しなかった。

また、比較例3、7はニトリル系モノマーが少なく、かつニトリル系モノマー中のアクリロニトリルの比率が少ない為に、シェルポリマーのガスバリア性が低く、低温でマイクロカプセルは熱膨張するものの発泡倍率は低く高温で「へたり」が生じた。

【0032】

比較例4は揮発性膨張剤が直鎖状分子である為に分子はかさ高くなくシェルポリマーから抜けやすく、低温で熱膨張しにくく、高温で「へたり」が生じた。

【0033】

比較例5はニトリル系モノマー成分にしめるアクリロニトリルの割合が高く、ガスバリア性を高める他のニトリル成分が少なくなるためシェルポリマーのガスバリア性が高くなく高温で「へたり」が生じた。

【0034】

【発明の効果】

本発明の熱膨張性マイクロカプセルは広い温度領域で熱膨張させることができる。したがって、塗料組成物などの樹脂組成物に含有させた場合は広い温度領域で高い発泡倍率が得られる。また、オープン等の加熱ムラが生じやすい加熱方法であっても加熱ムラに関係なく均一な発泡倍率の発泡体を得ることができる。

【書類名】 要約書**【要約】****【課題】**

広い温度領域で発泡させることができる熱膨張性マイクロカプセル、及び広い温度領域で発泡させることができる熱膨張性マイクロカプセル含有組成物を提供する。

【解決手段】

シェルポリマーの軟化点以下の温度でガス状になる揮発性膨張剤を内包する熱膨張性マイクロカプセルにおいて、シェルポリマーはニトリル系モノマーを70重量%以上含むモノマー成分から得られ、ニトリル系モノマー中のアクリロニトリルの比率が40～85%であり、揮発性膨張剤のうち分岐鎖状または環状の構造をとる揮発性膨張剤の比率が30%以上である。

【選択図】 なし

特願 2002-325569

出願人履歴情報

識別番号

[000002174]

1. 変更年月日

1990年 8月29日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

氏 名

積水化学工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☒ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.